

| | |
|---------------|--|
| Title | Development of Molecular Device Simulator Based on Landauer-Büttiker Formula with Extended Hückel Molecular Orbital Method |
| Author(s) | 楠野, 順弘 |
| Citation | |
| Issue Date | |
| oaire:version | |
| URL | https://hdl.handle.net/11094/46742 |
| rights | |
| Note | 著者からインターネット公開の許諾が得られていないため、論文の要旨のみを公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、 https://www.library.osaka-u.ac.jp/thesis/#closed 大阪大学の博士論文について こちら をご参照ください。 |

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

| | |
|---------------|---|
| 氏 名 | 楠 野 順 弘 |
| 博士の専攻分野の名称 | 博 士 (工 学) |
| 学 位 記 番 号 | 第 20410 号 |
| 学 位 授 与 年 月 日 | 平成 18 年 3 月 24 日 |
| 学 位 授 与 の 要 件 | 学位規則第 4 条第 1 項該当 基礎工学研究科物質創成専攻 |
| 学 位 論 文 名 | Development of Molecular Device Simulator Based on Landauer-Büttiker Formula with Extended Hückel Molecular Orbital Method (拡張 Hückel 分子軌道法を用いた Landauer-Büttiker 公式に基づく分子デバイスシミュレータの作成) |
| 論 文 審 査 委 員 | (主査) 教 授 鈴木 直 (副査) 教 授 戸部 義人 教 授 三宅 和正 教 授 弓田 博一 助教授 草部 浩一 |

論 文 内 容 の 要 旨

ナノスケールの分子を素子構成要素とする分子エレクトロニクスが、次世代の集積化デバイスとして注目を集めている。分子スケールのデバイス動作を提案するには、電極も含めた回路全てを量子力学に基づいて理解し、伝導特性を決定づける要因を解明する必要がある。従って、多端子構造などの大きな分子を扱うことができ、かつ置換基効果や化学反応性を議論できる量子化学を反映した伝導解析シミュレータが必要となる。

本研究では、以下の条件

- 0) バイアス印加下での電流電圧特性が評価可能である。
- 1) 量子力学に立脚している。
- 2) 周期性を仮定する必要なく、多端子のデバイス構造をそのままにシミュレーション可能である。
- 3) 分子素子の複合系を扱うため、少なくとも数百原子以上に対応可能である。

を全て満たす分子シミュレータを作成して種々の系に適用し、得られた結果からデバイス設計指針の抽出を行った。電子状態の計算には、分子の量子化学的性質を再現し、かつ計算コストの面で優れていることから拡張 Hückel 分子軌道法を採用し、多端子からなる素子構造にも適応可能な Landauer-Büttiker 公式に基づく伝導度解析ソフトおよび解析結果の 3 次元可視化ソフトを作成した。

具体的な適用例および主な得られた知見は以下の通りである。

1) 化学反応によって量子干渉効果が変化することを利用した分子デバイスの設計

量子干渉の出現を、対称的な電極接合の効果、機能分子素子の電子状態の節に電極が接合することによる効果、および多重散乱による効果の三つに分類した。これらの見いだされた効果を下に、伝導度を大きく変化させようための素子構造とその操作に対する条件抽出を行った。偶数からなるパイリング系が化学修飾を通じて機能発現するデバイスとして有効であることを見いだした。

2) 分子ダイオード素子に必要とされる設計指針の抽出

さまざまな置換基を有する 2 端子分子素子構造に対し、両端に印加する電圧のかけ方として、片方のみの化学ポテ

ンシャルを操作するものと両端の化学ポテンシャルを同時に操作するものとをシミュレーションにより比較することで、ダイオード特性の発現には非均衡な電界印加が不可欠であることを見いだした。また、置換基の種類、置換位置と電極との接点との相対的な位置関係なども比較することで、amino 置換された 1,2-diphenylethane に methoxy 基由来の構造をもつ電極が接合した系が、1,2-diphenylethane を主鎖にもつ系ではもっとも有望なダイオード特性を発揮することを探し当てた。

3) ナノチューブ構造の特性を活かした外場応答素子の設計

伝導度が軸方向の伸縮振動に対して大きく依存する可能性を見いだした。さらに、真っ直ぐなナノチューブに括れを導入することで、特定の部位のみを効率的に振動させ、かつ振動部位の局所化によって電極接合部への機械的影響を考慮したデバイスを設計し、伸縮振動に対する伝導度特性の振動動作を確認した。

また、論理回路を模した多端子分子構造やボロン・炭素・窒素の三成分からなるナノチューブの伝導特性についてもシミュレーションを実施した。

素子構造および外部から与えるバイアスのみを入力として、手軽に伝導特性を評価できることは、作成した分子シミュレータの有用性を示すものであり、種々の分子デバイスの伝導特性評価や素子機構提案に貢献するものである。

論文審査の結果の要旨

半導体加工における微細化の限界から、ナノスケールの分子を素子構成要素とする分子エレクトロニクスが、次世代の集積化デバイスを実現するテクノロジーとして注目を集めている。

本研究では、分子デバイスの設計を行うことを目的として、まず、電極も含めた分子回路全てを量子力学的に取り扱って、その伝導特性を解析できる分子デバイス・シミュレータの開発を行った。このシミュレータは、量子力学的電子状態の計算には拡張 Hückel 分子軌道法を、電気伝導の解析には Landauer-Büttiker 公式を採用しており、1) バイアス印加下での電流電圧特性が評価可能である、2) 周期性を仮定する必要なく、多端子のデバイス構造をそのままにシミュレーション可能である、3) 数百原子以上の系にも適用可能である、といった優れた特徴を持つものである。

次に開発したシミュレータを用いて、1) 化学反応による量子干渉効果の変化を利用した分子デバイスの設計、2) 分子ダイオード素子に必要とされる設計指針の抽出、3) ナノチューブ構造の特性を活かした外場応答素子の設計、を行った。特に注目すべき得られた結果としては次の二つを挙げることができる。

1. さまざまな置換基を有する 1,2-diphenylethane を主鎖にもつ 2 端子分子素子構造に対し、置換基の種類、置換位置と電極との接点との相対的な位置関係など、さまざまな観点から比較検討を行い、amino 置換された 1,2-diphenylethane に methoxy 基由来の構造をもつ電極が接合した系が、有望なダイオード特性を発揮することを探し当てた。

2. 真っ直ぐなナノチューブに括れを導入した系について、振動解析および伝導解析を行い、特定の部位のみを効率的に振動させ、かつ振動部位の局所化によって電極接合部への機械的影響を軽減したデバイスを設計し、光などの外場によってナノチューブを選択的に伸縮振動させることで、括れた部分の長さに応じた周波数の振動電流を発生するデバイス応用が望めることを示した。

また、非線形電流特性をもつ分子をつなげた系に対して、実際の論理回路としての電流特性解析を初めて行い、入力電圧に対して出力となる電圧が著しく小さいことを見出すなど、分子による複合論理回路の実現にはさらなる工夫が必要であることも指摘している。

以上のように、本研究は分子デバイスの具体的提言を行ったと同時に、開発した分子デバイス・シミュレータは今後の分子デバイス実現に向けた指針作成に大きく寄与することが期待される。よって本論文は博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。